Les cristaux dopés terres rares pour les technologies quantiques

Philippe GOLDNER, Diana SERRANO et Alexandre TALLAIRE

https://doi.org/10.63133/scf.act-chim.2026.520.01

Les technologies quantiques promettent de dépasser les limites des systèmes classiques actuels grâce aux propriétés uniques des systèmes quantiques, comme la possibilité d'obtenir des états de superposition ou intriqués. Ces derniers permettent, par exemple, d'établir de fortes corrélations entre des systèmes séparés par des grandes distances. Les technologies quantiques se développent à la fois dans des laboratoires académiques à travers le monde et dans des entreprises, depuis la start-up jusqu'à la multinationale. Ces technologies sont habituellement divisées en trois grandes catégories : les capteurs quantiques, qui sont par exemple capables de mesurer avec une très grande sensibilité et à une échelle atomique des champs magnétiques pour des applications dans la microélectronique ou la biologie ; les communications quantiques, qui peuvent assurer des communications dont la sécurité est garantie par les lois de la physique quantique ; le calcul ou la simulation quantique, pour lesquels il existe, dès aujourd'hui, des machines capables de dépasser les performances des plus puissants supercalculateurs classiques pour des tâches particulières.

À partir de ces dispositifs, dont certains sont disponibles commercialement, des efforts considérables doivent encore être menés pour augmenter leur performance, comme par exemple, la sensibilité, les distances de communication ou encore la puissance de calcul. Un défi particulièrement important est la création d'un réseau de communication quantique à l'échelle mondiale, équivalent à l'internet actuel [1]. Dans ce futur réseau, des ordinateurs, des capteurs et des liens de communication quantiques permettront de nouvelles applications comme le calcul quantique distribué ou des mesures augmentées par intrication.
Pour cela, des interfaces avec la lumière seront nécessaires. En effet, cette dernière est un excellent vecteur de l'information quantique et peut être transmise par des fibres optiques ou en espace libre par des liens satellitaires. De plus, des capacités de stockage et de traitement de l'information quantique sont également souhaitables. Une possibilité pour obtenir ces fonctionnalités est d'utiliser des matériaux optiquement actifs et d'exploiter leurs transitions optiques pour interagir avec la lumière et leurs transitions de spin pour les aspects de traitement et de stockage (*figure 1*).

Différentes plateformes sont actuellement envisagées : boîtes quantiques semi-conductrices, centres colorés dans le diamant ou le silicium, ou encore cristaux dopés par des ions de terres rares (TR) [2]. L'intérêt pour ces derniers réside dans leur structure électronique particulière : les électrons 4f sont écrantés par des couches pleines $5s^2$ et $5p^6$, ce qui réduit considérablement l'influence de perturbations comme les phonons du cristal hôte sur les états quantiques optiques. Ceci est caractérisé par la durée de vie de ces états, notée T_2, qui peut atteindre des valeurs de l'ordre de la ms à basse température (< 3 K), les plus longues observées dans l'état solide à ce jour [3]. À noter que le temps T_2, qui représente la durée pendant laquelle un état de superposition entre les niveaux fondamentaux et excités reste bien défini, est différent du temps de vie du niveau excité, noté T_1, qui correspond à la relaxation du niveau excité vers le niveau fondamental, c'est-à-dire au retour vers l'équilibre thermodynamique.
Les terres rares possèdent de plus des spins électroniques et/ou des spins nucléaires, selon l'isotope considéré, pour lesquels de longs T_2 sont également observés. Les cristaux dopés TR sont ainsi capables de former des interfaces lumière-matière performantes au niveau quantique.
Les matrices envisagées sont multiples, comme le silicium, des silicates (Y_2SiO_5), des oxydes binaires (Y_2O_3, TiO_2), des tungstates ($CaWO_4$), des halogénures ($EuCl_3{:}6H_2O$) ou encore des cristaux

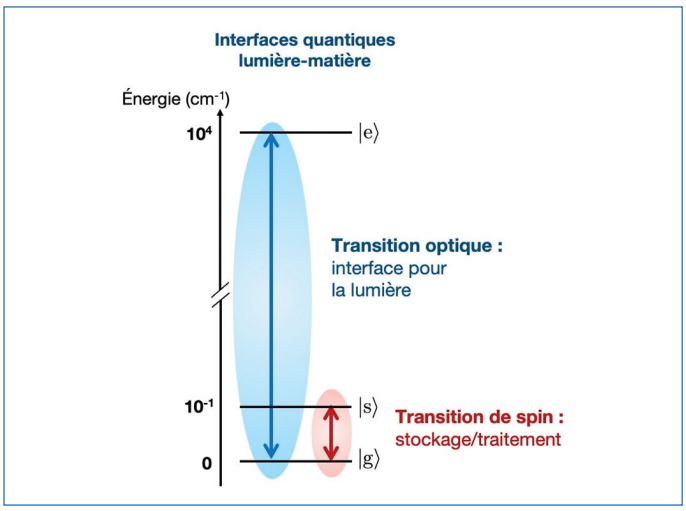


Figure 1 - Illustration de transitions optiques et de spin pour les interfaces quantiques avec la lumière. Les ellipses représentent des états de superposition quantique comme $(|g> + |e>)/\sqrt{2}$.

moléculaires. Les TR les plus étudiées aujourd'hui, typiquement sous leur forme trivalente, sont le praséodyme (Pr^{3+}), l'europium (Eu^{3+}), l'ytterbium (Yb^{3+}) et l'erbium (Er^{3+}). Chaque combinaison matrice-TR présente des avantages particuliers, par exemple en termes de T_2 optique et de spin, de longueur d'onde et de force des transitions optiques, ou encore de concentration en dopants maximale. Le choix optimal est dicté par les expériences ou les applications envisagées, qui se trouvent principalement dans les domaines des communications quantiques (mémoires, sources de photons uniques intriqués avec des spins) et du calcul quantique (processeurs, transducteurs micro-onde/optique).
Les cristaux massifs sont à ce jour les matériaux qui présentent les meilleures propriétés grâce à la possibilité de les obtenir avec une grande qualité structurale et une haute pureté. De ce fait, les temps de cohérence optique et de spin sont typiquement limités par le bruit magnétique dû aux spins électroniques ou nucléaires présents dans la matrice. Ceux-ci doivent être réduits le plus possible tout en favorisant le dopage par les TR.

Un exemple de cristal très utilisé dans le domaine est l'orthosilicate d'yttrium, Y_2SiO_5 (*figure 2*). La présence de Y^{3+} permet un dopage par substitution isovalente pour les TR mentionnées plus haut, avec de plus des rayons ioniques voisins. Cette matrice ne comprend pas de spins électroniques et l'élément comportant la plus grande proportion de spins nucléaires est l'isotope ^{89}Y (I = 1/2) dont l'abondance naturelle est de 100 %. Son moment magnétique est cependant faible, ce qui permet d'observer un bruit magnétique réduit dans ce cristal.
La croissance des cristaux de Y_2SiO_5 se fait à partir d'oxydes de départ de haute pureté (> 99,99 %) en utilisant le procédé Czochralski, dans lequel une boule cristalline est tirée à partir d'un germe monocristallin précisément orienté plongé dans un bain fondu. Ce procédé est communément utilisé pour la croissance du silicium et de cristaux pour des applications dans les lasers ou l'optique non linéaire. La température de fusion de Y_2SiO_5 est d'environ 2000 °C, ce qui nécessite l'utilisation de creusets résistants à de hautes températures comme l'iridium et de montages thermiquement isolants à base de matériaux réfractaires du type zircone. La vitesse

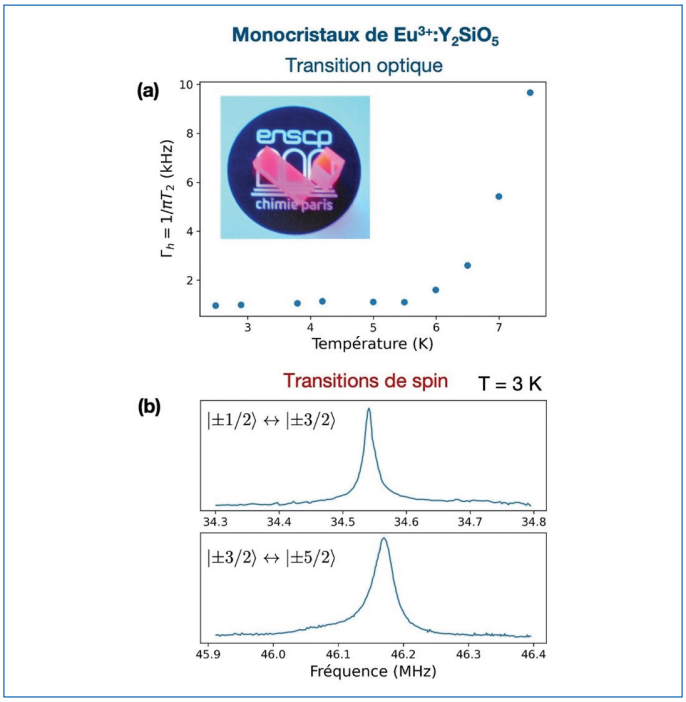


Figure 2 - Cristaux massifs de Eu^{3+}:Y_2SiO_5. (a) Variation du temps de vie des états quantiques optiques (T_2) en fonction de la température. La figure représente la quantité $\Gamma_h = 1/\pi T_2$ appelée largeur homogène. T_2 diminue rapidement au-dessus de 5,5 K, ce qui explique la nécessité de travailler à très basse température. En insert : échantillons de qualité optique orientés et polis. La fluorescence rouge est due aux ions Eu^{3+}. (b) Transitions de spin nucléaire du niveau fondamental de $^{151}Eu^{3+}$. Le signal de spin est détecté optiquement et est un exemple de la possibilité de contrôle optique des spins dans le contexte des interfaces quantiques lumière-matière.

de croissance est de l'ordre de 1 mm/h et est régulée par ordinateur dans les différentes phases de croissance.
Ce procédé permet d'obtenir des cristaux de grande qualité, exempts de bulles, de phases parasites ou d'inclusions et parfaitement adaptés à des expériences de spectroscopie des états quantiques. Ces dernières font intervenir des sources laser de grande pureté spectrale, divers dispositifs opto-électroniques et des réfrigérateurs fonctionnant en-dessous de 3 K. Des expériences spécifiques, notamment inspirées des séquences d'impulsions de la RMN, permettent de créer et de manipuler des états de superposition et d'en déterminer les durées de vie. Ces dernières peuvent dépasser plusieurs ms pour les transitions optiques de Er^{3+} sous fort champ magnétique (7 T) et à 1,4 K [4]. Ce sont les plus longs T_2 optiques observés dans un solide – environ six ordres de grandeur plus longs que pour des émetteurs quantiques comme les centres azote-lacune (NV en anglais) dans le diamant. Les transitions de spin peuvent également présenter des T_2 très longs : dans Eu^{3+}:Y_2SiO_5, un temps de cohérence dépassant 10 h a été obtenu sous un champ magnétique précis et en appliquant des techniques de contrôle des états quantiques [5]. Ces résultats conduisent à des démonstrations dans le domaine des mémoires quantiques. Celles-ci peuvent enregistrer l'information quantique portée par la lumière en absorbant un photon unique, stocker cette information dans une transition optique ou la transférer dans un état de spin, et enfin générer à nouveau un photon unique dont l'état quantique est identique au premier [3]. De telles mémoires, nécessaires aux communications quantiques à longue distance, ont été démontrées pour des états intriqués dans un cristal de Pr^{3+}:Y_2SiO_5 en 2021 [6].

Un effort considérable est actuellement consenti dans des laboratoires universitaires ou industriels (MemQ - E.-U., Thales RT - France...)

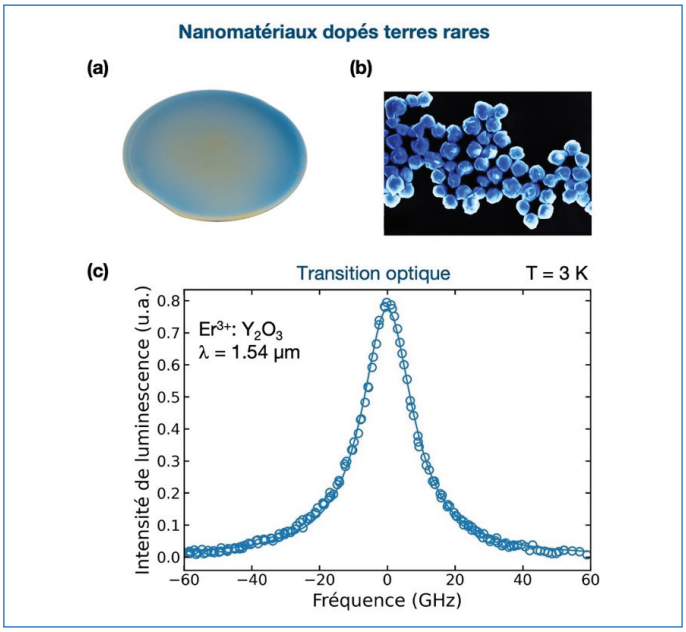


Figure 3 - Nanomatériaux pour les technologies quantiques : (a) Film mince (500 nm) de Eu^{3+}:Y_2O_3 obtenu par dépôt chimique en phase vapeur (CVD) sur un substrat de silicium de 2 pouces de diamètre. (b) Nanoparticules (environ 400 nm de diamètre) de Eu^{3+}:Y_2O_3 obtenues par décomposition lente en solution. (c) Transition optique observée dans un film de Er^{3+}:Y_2O_3 déposé sur un substrat de diamant à la longueur d'onde de 1,54 µm. Sa faible largeur spectrale (18 GHz, soit 0,14 nm) montre la bonne qualité cristalline de ce film.

pour transposer les excellentes propriétés des matériaux massifs à des nanoparticules [7], des films minces [8,9] ou encore des cristaux moléculaires [10], afin de réaliser des puces photoniques quantiques dans lesquelles des terres rares sont couplées à des guides d'ondes ou des résonateurs quantiques (*figure 3*). Ceci permettrait d'obtenir des dispositifs compacts et efficaces, offrant de nombreuses fonctionnalités quantiques : mémoires, sources de photons et processeurs.

[1] S. Wehner, D. Elkouss, R. Hanson, Quantum internet: a vision for the road ahead, *Science*, **2018**, *362*, eaam9288, https://doi.org/10.1126/science.aam9288
[2] D. D. Awschalom, R. Hanson, J. Wrachtrup, B. B. Zhou, Quantum technologies with optically interfaced solid-state spins, *Nature Photon.*, **2018**, *12*, p. 516-27, https://doi.org/10.1038/s41566-018-0232-2
[3] P. Goldner, A. Ferrier, O. Guillot-Noël, Chap. 267 - Rare earth-doped crystals for quantum information processing, in *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths, vol. 46*, J.-C.G. Bünzli, V.K. Pecharsky (eds), Elsevier, **2015**, pp. 1-78, https://doi.org/10.1016/B978-0-444-63260-9.00267-4
[4] T. Böttger, C. W. Thiel, R. L. Cone, Y. Sun, Effects of magnetic field orientation on optical decoherence in Er^{3+}:Y_2SiO_5, *Phys. Rev. B*, **2009**, *79*, 115104, https://doi.org/10.1103/PhysRevB.79.115104
[5] F. Wang *et al.*, Nuclear spins in a solid exceeding 10-hour coherence times for ultra-long-term quantum storage, *PRX Quantum*, **2025**, *6*, 010302, https://doi.org/10.1103/PRXQuantum.6.010302
[6] D. Lago-Rivera, S. Grandi, J. V. Rakonjac, A. Seri, H. de Riedmatten, Telecom-heralded entanglement between multimode solid-state quantum memories, *Nature*, **2021**, *594*, p. 37-40, https://doi.org/10.1038/s41586-021-03481-8
[7] S. Liu *et al.*, Defect engineering for quantum grade rare-earth nanocrystals, *ACS Nano*, **2020**, *14*, p. 9953-62, https://doi.org/10.1021/acsnano.0c02971
[8] P. Goldner, A. Tallaire, D. Serrano, A. Tiranov, T. Zhong, Rare-earth doped thin films for optical quantum technologies, *Adv. Quantum Technol.*, **2025**, *8*, e2500026, https://doi.org/10.1002/qute.202500026
[9] I. G. Balaşa *et al.*, Rare earth-Diamond hybrid structures for Optical Quantum Technologies, *Adv. Opt. Mater.*, **2024**, 2401487, https://doi.org/10.1002/adom.202401487
[10] D. Serrano *et al.*, Ultra-narrow optical linewidths in rare-earth molecular crystals, *Nature*, **2022**, *603*, p. 241-46, https://doi.org/10.1038/s41586-021-04316-2

Cette fiche a été préparée par **Philippe GOLDNER** (philippe.goldner@chimieparistech.psl.eu), directeur de recherche, **Diana SERRANO**, chargée de recherche, et **Alexandre TALLAIRE**, directeur de recherche, à l'Institut de Recherche de Chimie Paris, Chimie ParisTech, CNRS, Université PSL, 11 rue Pierre et Marie Curie,75005 Paris.

Les fiches « Un point sur » sont coordonnées par Jean-Pierre FOULON (jpfoulon@wanadoo.fr) et Julien LALANDE (jlalande@nordnet.fr). Elles sont en téléchargement libre sur www.lactualitechimique.org